

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-025581

(43)Date of publication of application : 25.01.2002

(51)Int.Cl.

H01M 8/02  
H01M 8/10  
// B01D 69/12

(21)Application number : 2000-204131

(71)Applicant : HONDA MOTOR CO LTD

(22)Date of filing : 05.07.2000

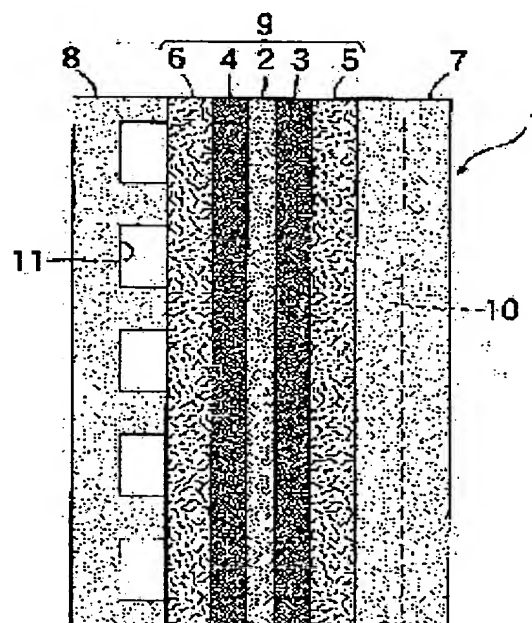
(72)Inventor : FUKUDA KAORU  
ASANO YOICHI  
KANEOKA NOBUYUKI  
SAITO NOBUHIRO  
NANAUMI MASAACKI

## (54) ELECTROLYTE FILM AND ELECTRODE ASSEMBLY FOR SOLID HIGH POLYMER MOLECULE FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To enable recycling electrolyte films.

SOLUTION: The electrolyte film and electrode assembly 9 of the solid high polymer molecule type fuel cell is equipped with an electrolyte film 2, and an air electrode 3 and a fuel electrode 4 which sandwich the electrolyte film 2. The electrolyte film 2, the air electrode 3, and the fuel electrode 4 have a high polymer molecule ion exchange component, respectively. The high polymer molecule ion exchange component is an aromatic hydrocarbon system high polymer molecule ion exchange component not having fluorine and solvable in a solvent.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

22.06.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

3535455

[Date of registration]

19.03.2004

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

**BEST AVAILABLE COPY**

**\* NOTICES \***

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

[Claim(s)]

[Claim 1] It has the air pole (3) and fuel electrode (4) which sandwich an electrolyte membrane (2) and its electrolyte membrane (2). These electrolyte membranes (2), In the electrolyte membrane-electrode collection object of a polymer electrolyte fuel cell with which an air pole (3) and a fuel electrode (4) have a macromolecule ion-exchange component, respectively said macromolecule ion-exchange component The electrolyte membrane-electrode collection object of a polymer electrolyte fuel cell which is a non-fluorine and is characterized by being an aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component meltable to a solvent.

[Claim 2] For said electrolyte membrane (2), solubility [ as opposed to / have the 1st aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component, and said air pole (3) and fuel electrode (4) have the 2nd aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component, respectively, and / said solvent ] is an electrolyte membrane-electrode collection object of a polymer electrolyte fuel cell according to claim 1 whose direction of said 2nd aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component is size from said 1st aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component.

---

[Translation done.]

**BEST AVAILABLE COPY**

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention is especially equipped with the electrolyte membrane-electrode collection object of a polymer electrolyte fuel cell, the air pole which sandwiches an electrolyte membrane and its electrolyte membrane, and a fuel electrode, and these electrolyte membranes, an air pole, and a fuel electrode are related with the electrolyte membrane-electrode collection object of a polymer electrolyte fuel cell which has a macromolecule ion-exchange component, respectively.

[0002]

[Description of the Prior Art] Conventionally, the fluororesin system ion exchanger is used as a macromolecule ion-exchange component in this kind of collection object.

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] that recovery reuse since said fluororesin system ion exchanger is generally insoluble to a solvent — as a matter of fact — impossible — this point — it was uneconomical.

[0004] Moreover, in an air pole and a fuel electrode, although the air pole and the fuel electrode, and the electrolyte membrane were burning said collection object since it was generally unified by the hotpress when collecting the things which made the catalyst particle contained in them, for example, a carbon black particle, support two or more Pt (platinum) particles, there was also a problem that the recovery by this thing [ burning ] had bad workability.

[0005]

[Means for Solving the Problem] This invention aims at offering said collection object which enabled it to collect easily the catalyst particles which enable recovery reuse of an electrolyte membrane and are contained in the air pole and the fuel by using a specific thing as a macromolecule ion-exchange component.

[0006] In order to attain said purpose, according to this invention, it has an electrolyte membrane, and the air pole and fuel electrode which sandwich the electrolyte membrane, and in the electrolyte membrane-electrode collection object of a polymer electrolyte fuel cell with which these electrolyte membranes, an air pole, and a fuel electrode have a macromolecule ion-exchange component, respectively, the electrolyte membrane-electrode collection object of the polymer electrolyte fuel cell which said macromolecule ion-exchange component is a non-fluorine, and is an aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component meltable to a solvent is offered.

[0007] The aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component of the air pole which is outside when immersed in a solvent, and a fuel electrode dissolves said collection object, and, thereby, recovery of a catalyst particle is performed. Then, if a non-melt is taken out from a solvent, since it is a part equivalent to an electrolyte membrane, recovery of an electrolyte membrane will be performed. An electrolyte membrane can be obtained using this as a film molding material.

[0008]

[Embodiment of the Invention] In drawing 1, the cel 1 which constitutes a polymer electrolyte fuel cell consists of diffusion layers 5 and 6 of the pair stuck to an electrolyte membrane 2, the air pole 3 and fuel electrode 4 which are stuck to the both sides, respectively, and these two poles 3 and 4, respectively, and separators 7 and 8 of the pair stuck to both [ these ] the diffusion layers 5 and 6. In the example, an electrolyte membrane 2, an air pole 3, and not only the fuel electrode 4 but both the diffusion layers 5 and 6 are included in the electrolyte membrane-electrode collection object 9.

[0009] The electrolyte membrane 2 consists of aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange components. An air pole 3 and a fuel electrode 4 consist of two or more catalyst particles which made the front face of a carbon black particle support two or more Pt particles, and the same as that of the above or a different aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component, respectively.

[0010] Hydrogen is supplied to two or more slots 11 on the relation which each diffusion layers 5 and 6 consist of porous carbon paper, a carbon plate, etc., and each separators 7 and 8 consist of graphitized carbon so that it may have the same gestalt, air is in the separator 8 by the side of a fuel electrode 4 in two or more slots'10

BEST AVAILABLE COPY

which consist in the separator 7 by the side of an air pole 3 again, and intersect said slot 10, respectively.  
 [0011] An aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component is a non-fluorine, and has in a solvent the property of being meltable. As this kind of a macromolecule ion-exchange component, the various ion exchangers mentioned to Table 1 are used.

[0012]

[Table 1]

高分子イオン交換成分	母 体	母体のベンゼン環の H原子との置換基
例 1	ポリエーテルエーテルケトン (P E E K)	スルホン酸基
例 2	ポリエーテルスルホン (P E S)	
例 3	ポリスルホン (P S F)	
例 4	ポリエーテルイミド (P E I)	
例 5	ポリフェニレンスルフィド (P P S)	
例 6	ポリフェニレンオキシド (P P O)	

[0013] As a solvent, the various polar solvents mentioned to Table 2 are used.

[0014]

[Table 2]

極 性 溶 剤	沸 点
ジメチルアセトアミド (DMA c)	1 6 5. 5 ℃
ジメチルホルムアミド (DMF)	1 5 3 ℃
ジメチルスルフォキシド (DMS O)	1 8 9 ℃
トリエチルフォスフェート (T E P)	1 1 5 ℃
N-メチルピロリドン (NMP)	2 0 2 ℃

**BEST AVAILABLE COPY**

[0015] The aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component which constitutes an electrolyte membrane 2, i.e., the 1st macromolecule ion-exchange component, (1st aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component) An air pole 3 And the solubility over the solvent of the aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component of a fuel electrode 4, i.e., the 2nd macromolecule ion-exchange component, (2nd aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component) It is desirable that the direction of the 2nd macromolecule ion-exchange component is size from the 1st macromolecule ion-exchange component. Since the 2nd macromolecule ion-exchange component of an air pole 3 and a fuel electrode 4 exists near the \*\*\*\* of the location which catalytic reaction produces, since thermal degradation is intense, the reason has it in collecting ahead of an electrolyte membrane 2 and discarding. It is possible for this to raise the purity of the 1st macromolecule ion-exchange component of an electrolyte membrane 2.

[0016] This soluble difference is attained by preparing a difference in the average molecular weight of both the macromolecules ion-exchange component, when the 1st and 2nd macromolecule ion-exchange component is the same or of the same kind. That is, it is easy to dissolve rather than a thing with the high one where average molecular weight is lower. for example, the time of setting average molecular weight of the 1st macromolecule

ion-exchange component to A in consideration of endurance a premise [ the 1st and 2nd macromolecule ion-exchange component having 5000 or more average molecular weight ], and setting average molecular weight of the 2nd macromolecule ion-exchange component to B -- the ratio of both average molecular weight -- as for B/A, it is desirable that it is  $0.1 \leq B/A < 1.0$ . however, a ratio -- if B/A is set to  $B/A < 0.1$ , the endurance of an air pole 3 and a fuel electrode 4 falls, and in order that those thickness maintenance ability may greatly decline, secular change of the generation-of-electrical-energy engine performance etc. will become remarkable. On the other hand, the recovery of the 1st macromolecule ion-exchange component which constitutes an electrolyte membrane 2 from  $B/A \geq 1.0$  falls.

[0017] It is also possible to use two sorts of things which differ in the solubility over a solvent as 1st and 2nd macromolecule ion-exchange component, and have different chemical composition.

[0018] Hereafter, an example is explained.

I. The manufacture carbon black particle (trade name: KETCHIEN black EC) of an electrolyte membrane-electrode collection object was made to support Pt particle, and the catalyst particle was prepared. The content of Pt particle in a catalyst particle is 50wt(s)%.

[Example-I] As an aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component, it is Example 1 (PEEK) of Table 1, and the 1st macromolecule ion-exchange component of 50,000 and average molecular weight prepared [ average molecular weight ] the 2nd macromolecule ion-exchange component of 45,000. in this case, the ratio of the average molecular weight A of the 1st macromolecule ion-exchange component, and the average molecular weight B of the 2nd macromolecule ion-exchange component -- B/A is  $B/A = 0.9$ .

[0019] The electrolyte membrane 2 with a thickness of 50 micrometers was fabricated using the 1st macromolecule ion-exchange component. Moreover, the reflux dissolution of the 2nd macromolecule ion-exchange component was carried out at NMP of Table 2. The content of the 2nd macromolecule ion-exchange component in this solution is 6wt(s)%.

[0020] In the 2nd macromolecule ion-exchange component content solution, the catalyst particle was mixed so that it might be set to the 2nd macromolecule ion-exchange component:catalyst particle = 3:5 by the weight ratio, subsequently in it, distribution of a catalyst particle was aimed at using the ball mill, and the air pole 3 and the slurry for fuel electrodes 4 were prepared in it. The amount of Pt(s) is this slurry 0.5 mg/cm<sup>2</sup> It applied to both sides of an electrolyte membrane 2, respectively so that it might become, and after desiccation, the diffusion layer 5 and the porosity carbon plate for six with which it was given a water-repellent finish, respectively were applied to these spreading layer, the hotpress was performed the condition for 140 degrees C, 1.5MPa, and 1 minute in it, and the electrolyte membrane-electrode collection object 9 was acquired in it. This is made into an example (1).

[Example-II] As an aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component, it is Example 1 (PEEK) of Table 1, and the 1st macromolecule ion-exchange component of 50,000 and average molecular weight prepared [ average molecular weight ] the 2nd macromolecule ion-exchange component of 45,000 for the example-I said appearance. in this case, the ratio of the average molecular weight A of the 1st macromolecule ion-exchange component, and the average molecular weight B of the 2nd macromolecule ion-exchange component -- B/A is  $B/A = 0.9$ .

[0021] Henceforth, except for the point of having set the temperature of a hotpress as 200 degrees C, the same approach as example-I was enforced and the electrolyte membrane-electrode collection object 9 was acquired. This is made into an example (2).

[Example-III] As an aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component, it is Example 2 (PES) of Table 1, and the 1st macromolecule ion-exchange component of 50,000 and average molecular weight prepared [ average molecular weight ] the 2nd macromolecule ion-exchange component of 45,000. in this case, the ratio of the average molecular weight A of the 1st macromolecule ion-exchange component, and the average molecular weight B of the 2nd macromolecule ion-exchange component -- B/A is  $B/A = 0.9$ .

[0022] Henceforth, except for the point of having set the temperature of a hotpress as 190 degrees C, the same approach as example-I was enforced and the electrolyte membrane-electrode collection object 9 was acquired. This is made into an example (3).

[Example-IV] As an aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component, it is Example 3 (PSF) of Table 1, and the 1st macromolecule ion-exchange component of 50,000 and average molecular weight prepared [ average molecular weight ] the 2nd macromolecule ion-exchange component of 25,000. in this case, the ratio of the average molecular weight A of the 1st macromolecule ion-exchange component, and the average molecular weight B of the 2nd macromolecule ion-exchange component -- B/A is  $B/A = 0.5$ .

[0023] Henceforth, except for the point of having set the temperature of a hotpress as 170 degrees C, the same approach as example-I was enforced and the electrolyte membrane-electrode collection object 9 was acquired. This is made into an example (4).

[Example-V] It is an example as an aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component. -- Like IV, it is Example 3 (PSF) of Table 1, and the 1st macromolecule ion-exchange component of 50,000 and average molecular weight prepared [ average molecular weight ] the 2nd macromolecule ion-exchange

component of 12,500. in this case, the ratio of the average molecular weight A of the 1st macromolecule ion-exchange component, and the average molecular weight B of the 2nd macromolecule ion-exchange component —  $B/A$  is  $B/A=0.25$ .

[0024] Henceforth, example — Like IV, except for the point of having set the temperature of a hotpress as 170 degrees C, the same approach as example—I was enforced and the electrolyte membrane-electrode collection object 9 was acquired. This is made into an example (5).

[Example—VI] It is an example as an aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component. — Like IV, it is Example 1 (PEEK) of Table 1, and the 1st macromolecule ion-exchange component of 50,000 and average molecular weight prepared [ average molecular weight ] the 2nd macromolecule ion-exchange component of 5,000. in this case, the ratio of the average molecular weight A of the 1st macromolecule ion-exchange component, and the average molecular weight B of the 2nd macromolecule ion-exchange component —  $B/A$  is  $B/A=0.1$ . Henceforth, example — Like IV, except for the point of having set the temperature of a hotpress as 170 degrees C, the same approach as example—I was enforced and the electrolyte membrane-electrode collection object 9 was acquired. This is made into an example (6).

[Example—VII] As an aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component, it is Example 1 (PEEK) of Table 1, and the 1st macromolecule ion-exchange component of 50,000 and average molecular weight prepared [ average molecular weight ] the 2nd macromolecule ion-exchange component of 2,500 for the example—I said appearance. in this case, the ratio of the average molecular weight A of the 1st macromolecule ion-exchange component, and the average molecular weight B of the 2nd macromolecule ion-exchange component —  $B/A$  is  $B/A=0.05$ .

[0025] Henceforth, example — Like IV, except for the point of having set the temperature of a hotpress as 170 degrees C, the same approach as example—I was enforced and the electrolyte membrane-electrode collection object 9 was acquired. Let this be an example of a comparison (1).

[Example—VIII] As an aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component, it is Example 1 (PEEK) of Table 1, and the 1st macromolecule ion-exchange component of 50,000 and average molecular weight prepared [ average molecular weight ] the 2nd macromolecule ion-exchange component of 75,000 for the example—I said appearance. in this case, the ratio of the average molecular weight A of the 1st macromolecule ion-exchange component, and the average molecular weight B of the 2nd macromolecule ion-exchange component —  $B/A$  is  $B/A=1.5$ .

[0026] Henceforth, example — Like IV, except for the point of having set the temperature of a hotpress as 170 degrees C, the same approach as example—I was enforced and the electrolyte membrane-electrode collection object 9 was acquired. Let this be an example of a comparison (2).

Examples (1), such as recovery of the 1st macromolecule ion-exchange component which constitutes II. electrolyte membrane, were immersed in DMAc (boiling point: 165.5 degrees C) of Table 2, subsequently, the temperature up of the DMAc was carried out to 165 degrees C, and the 2nd macromolecule ion-exchange component which constitutes an air pole 3 and a fuel electrode 4 by this was dissolved. Pressure filtration processing was performed for an electrolyte membrane 2 and diffusion layers 5 and 6 to drawing and its DMAc out of DMAc, and the mixture of a catalyst particle and the 2nd macromolecule ion-exchange component was separated from DMAc. The mixture was burned and catalyst particles were collected.

[0027] On the other hand, the electrolyte membrane 2 was immersed in new DMAc, subsequently, the temperature up of the DMAc was carried out to 165 degrees C, and this dissolved completely an electrolyte membrane 2, therefore the 1st macromolecule ion-exchange component. It condensed until it held this solution in the temperature up condition succeeding and the remainder became less than [ 50vol% ]. The acetone was added to concentration liquid, the 1st macromolecule ion-exchange component was settled, subsequently it filtered, and the 1st macromolecule ion-exchange components were collected.

[0028] Example (2) About — (6) and the example of a comparison (1), and (2), said same activity was done and the catalyst particle and the 1st macromolecule ion-exchange component in them were collected.

[0029] And recovery  $F=(E/D) \times 100(\%)$  was computed by having set weight of the 1st macromolecule ion-exchange component of the beginning to D, and having set weight of that after recovery to E.

[0030] Moreover, about example (1) — (6) and the example of a comparison (1), and (2), the compression durability test was performed on 150 degrees C, 80% of temperature, planar pressure 0.8MPa, and the conditions of 200 hours, it asked for the thickness retention H of an electrolyte membrane 2, and the thickness retention J of an air pole 3 (a fuel electrode 4 is also good), and, subsequently ratio  $K=(J/H) \times 100(\%)$  of both the thickness retention H and J was computed.

[0031] the ratio of the average molecular weight A and B of the concerning [ Table 3 ] example (1) — (6) and example of comparison (1), and (2) 1st, and 2nd macromolecule ion-exchange component — the recovery F of  $B/A$  and the 1st macromolecule ion-exchange component and the ratio K of both the thickness retention H and J are shown.

[0032]

[Table 3]

BEST AVAILABLE COPY

電解質膜－ 電極集成体	両平均分子量 の比 B/A	第1の高分子イ オン交換成分の 回収率F (%)	両厚さ保持率 の比率K (%)
実施例 (1)	0.9	90	98
実施例 (2)	0.9	90	98
実施例 (3)	0.9	90	98
実施例 (4)	0.5	92	94
実施例 (5)	0.25	92	92
実施例 (6)	0.1	92	88
比較例 (1)	0.05	91	64
比較例 (2)	1.5	52	100

[0033] drawing 2 -- Table 3 -- being based -- the ratio of both average molecular weight -- relation with the ratio K of the recovery F of B/A and the 1st macromolecule ion-exchange component and both thickness retention is graph-ized.

[0034] In example (1) - (6), the recovery F of the 1st macromolecule ion-exchange component and the ratio K of both thickness retention are high so that clearly from Table 3 and drawing 2 . while both the average molecular weight A and B of this is A and B>=5000 -- a ratio -- it originates in B/A being 0.1 <=B/A<1.0.

[0035] Although the recovery F of the 1st macromolecule ion-exchange component of the example of a comparison (1) is high since the average molecular weight B of the 2nd macromolecule ion-exchange component is B<=5000, the compression endurance of an air pole 3 is low, therefore a ratio K falls. On the other hand, since the example of a comparison (2) is B/A>=1.0, in order for the 1st macromolecule ion-exchange component to tend to dissolve it rather than the 2nd macromolecule ion-exchange component, the recovery F of the 1st macromolecule ion-exchange component falls sharply.

Correlation with the existence of III. water repellent, and the generation-of-electrical-energy engine performance (1) The carbon black particle (trade name: KETCHIEN black EC) of the manufacture 1st of an example (7) was made to support Pt particle, and the catalyst particle for fuel electrodes 4 was prepared. The content of Pt particle in a catalyst particle is 50wt(s)%.

[0036] Moreover, the 2nd carbon black particle (trade name: Vulcan XC-72) was made to support Pt particle, and the catalyst particle for air poles 3 was prepared. The content of Pt particle in this catalyst particle is 50wt(s)%.

[0037] As an aromatic hydrocarbon system macromolecule ion-exchange component, it is Example 1 (PEEK) of Table 1, and the 1st macromolecule ion-exchange component of 50,000 and average molecular weight prepared [ average molecular weight ] the 2nd macromolecule ion-exchange component of 45,000. in this case, the ratio of the average molecular weight A of the 1st macromolecule ion-exchange component, and the average molecular weight B of the 2nd macromolecule ion-exchange component -- B/A is B/A=0.9.

[0038] The electrolyte membrane 2 with a thickness of 50 micrometers was fabricated using the 1st macromolecule ion-exchange component. Moreover, the reflux dissolution of the 2nd macromolecule ion-exchange component was carried out at NMP of Table 2. The content of the 2nd macromolecule ion-exchange component in this solution is 6wt(s)%.

[0039] the 2nd macromolecule ion-exchange component content solution -- a weight ratio -- the object for the 2nd macromolecule ion-exchange component:fuel electrode 4 -- the catalyst particle was mixed, subsequently distribution of a catalyst particle was aimed at using the ball mill, and the slurry for fuel electrodes 4 was prepared so that it might be set to catalyst particle =3:5.

[0040] moreover, said 2nd macromolecule ion-exchange component content solution -- a weight ratio -- the object for the 2nd macromolecule ion-exchange component:air pole 3 -- the catalyst particle was mixed so that it might be set to catalyst particle =3:5, subsequently distribution of a catalyst particle was aimed at using the ball mill, and the slurry for air poles 3 was prepared. The amount of Pt(s) is both slurries 0.5 mg/cm<sup>2</sup> It applied to both sides of an electrolyte membrane 2, respectively so that it might become, and after desiccation, a diffusion layer 5 and the carbon paper for six were applied to these spreading layer, respectively, the hotpress was performed the condition for 140 degrees C, 1.5MPa, and 1 minute in it, and the electrolyte membrane-electrode collection object 9 was acquired in it. This is made into an example (7).

[0041] (2) As water repellent, PTFE (polytetrafluoroethylene) was added to the slurry for air poles 3 stated by manufacture of the manufacture example (7) of the example of a comparison (3), and the new slurry for air poles 3 was prepared to it. In this case, the addition L of PTFE was set to that 10wt(s)%, L=0.1M [ i.e., ], when the weight sum of the 2nd macromolecule ion-exchange component and the catalyst particle for air poles 3 was set to M.

[0042] Except for the point of having used the slurry for air poles 3 containing such PTFE, the same approach as the case of an example (7) was enforced, and the electrolyte membrane-electrode collection object 9 was acquired. Let this be an example of a comparison (3).

[0043] (3) It generated electricity by having assembled the polymer electrolyte fuel cell using the example (7), and the relation between current density and terminal voltage was measured. Moreover, it performed that the same was said of the example of a comparison (3).

[0044] Table 4 shows a measurement result. Front Naka and a cell [a fruit (7)] mean the cell which used the example (7), and a cell [a ratio (3)] means the cell which used the example of a comparison (3). This is henceforth the same. In addition, as for the water amount of adsorption in 60 degrees C, the KETCHIEN black EC was 370 cc/g and Vulcan XC-72 were 72 cc/g.

[0045]

[Table 4]

電流密度 (A/cm <sup>2</sup> )	端 子 電 圧 (V)	
	電池 [実 (7)]	電池 [比 (3)]
0.0	0.95	0.96
0.1	0.82	0.83
0.2	0.77	0.78
0.3	0.72	0.72
0.4	0.7	0.7
0.5	0.67	0.68
0.6	0.65	0.66
0.7	0.62	0.64
0.8	0.58	0.59
0.9	0.54	0.55
1.0	0.5	0.51
1.1	0.46	0.48
1.2	0.42	0.43
1.3	0.38	0.38
1.4	0.33	0.33
1.5	0.24	0.24

**BEST AVAILABLE COPY**

[0046] Drawing 3 graph-izes relation between current density and terminal voltage based on Table 4. For the cell [a ratio (3)] using PTFE as water repellent so that clearly from Table 4 and drawing 3, although the generation-of-electrical-energy engine performance is excellent a little compared with the cell [a fruit (7)] without PTFE, the difference is current density 1.0 A/cm<sup>2</sup>. It is small as it said that the terminal voltage difference which can be set was 10mV.

[0047] an example (7) and the example of a comparison (3) -- setting -- the recovery of an electrolyte membrane 2, therefore the 1st macromolecule ion-exchange component -- abbreviation -- although it is the same, in the case of the example of a comparison (3), recovery of the catalyst particle from an air pole 3 is very difficult from PTFE being included.

[0048]

[Effect of the Invention] According to invention according to claim 1, the electrolyte membrane-electrode collection object which can collect and reuse the catalyst particle contained in an air pole and a fuel electrode



and the macromolecule ion-exchange component of an electrolyte membrane can be offered by constituting as mentioned above.

[0049] According to invention according to claim 2, the electrolyte membrane-electrode collection object which can raise the recovery of a catalyst particle and an electrolyte membrane further can be offered.

---

[Translation done.]

**BEST AVAILABLE COPY**

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

DESCRIPTION OF DRAWINGS

---

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is the outline side elevation of the cell which constitutes a polymer electrolyte fuel cell.

[Drawing 2] the ratio of both average molecular weight -- it is the graph which indicates relation with the ratio K of the recovery F of the 1st macromolecule ion-exchange component, and both thickness retention to be B/A.

[Drawing 3] It is the graph which shows the relation between the current density of the polymer electrolyte fuel cell using an example (7) and the example of a comparison (3), and terminal voltage.

[Description of Notations]

- 1 ..... Cell
- 2 ..... Electrolyte membrane
- 3 ..... Air pole
- 4 ..... Fuel electrode

---

[Translation done.]

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-25581

(P2002-25581A)

(43) 公開日 平成14年1月25日 (2002.1.25)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

データベース (参考)

H 0 1 M 8/02

H 0 1 M 8/02

P 4 D 0 0 6

8/10

8/10

5 H 0 2 6

// B 0 1 D 69/12

B 0 1 D 69/12

審査請求 有 請求項の数 2 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2000-204131 (P2000-204131)

(22) 出願日 平成12年7月5日 (2000.7.5)

(71) 出願人 000005326

本田技研工業株式会社

東京都港区南青山二丁目1番1号

(72) 発明者 福田 薫

埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会

社本田技術研究所内

(72) 発明者 浅野 洋一

埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会

社本田技術研究所内

(74) 代理人 100071870

弁理士 落合 健 (外1名)

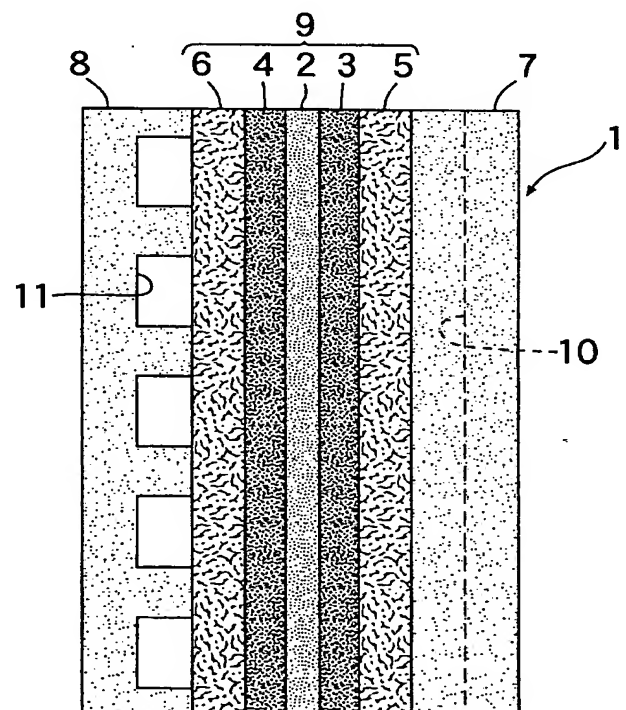
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 固体高分子型燃料電池の電解質膜-電極集成体

(57) 【要約】

【課題】 電解質膜の回収再利用を可能にする。

【解決手段】 固体高分子型燃料電池の電解質膜-電極集成体9は、電解質膜2と、その電解質膜2を挟む空気極3および燃料極4とを備える。それら電解質膜2、空気極3および燃料極4はそれぞれ高分子イオン交換成分を有する。その高分子イオン交換成分は、無フッ素であって溶剤に可溶な芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分である。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 電解質膜 (2) と、その電解質膜 (2) を挟む空気極 (3) および燃料極 (4) とを備え、それら電解質膜 (2)、空気極 (3) および燃料極 (4) はそれぞれ高分子イオン交換成分を有する、固体高分子型燃料電池の電解質膜-電極集成体において、前記高分子イオン交換成分は、無フッ素であって溶剤に可溶な芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分であることを特徴とする、固体高分子型燃料電池の電解質膜-電極集成体。

【請求項 2】 前記電解質膜 (2) は第 1 の芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分を有し、また前記空気極 (3) および燃料極 (4) はそれぞれ第 2 の芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分を有し、前記溶剤に対する溶解性は前記第 2 の芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分の方が前記第 1 の芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分よりも大である、請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池の電解質膜-電極集成体。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、固体高分子型燃料電池の電解質膜-電極集成体、特に、電解質膜と、その電解質膜を挟む空気極および燃料極とを備え、それら電解質膜、空気極および燃料極はそれぞれ高分子イオン交換成分を有する、固体高分子型燃料電池の電解質膜-電極集成体に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 従来、この種の集成体における高分子イオン交換成分としてはフッ素樹脂系イオン交換体が用いられている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】 前記フッ素樹脂系イオン交換体は一般に溶剤に不溶であることから、その回収再利用は事実上不可能であり、この点不経済であった。

【0004】 また空気極および燃料極において、それらに含まれた触媒粒子、例えばカーボンブラック粒子に複数の Pt (白金) 粒子を担持させたものを回収する場合には、空気極および燃料極と、電解質膜とが、一般にホットプレスにより一体化されていることから、前記集成体を燃やしているが、この燃やすことによる回収は作業性が悪い、という問題もあった。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】 本発明は、高分子イオン交換成分として特定のものをを用いることによって、電解質膜の回収再利用を可能にし、また空気極および燃料に含まれている触媒粒子を容易に回収し得るようにした前

記集成体を提供することを目的とする。

【0006】 前記目的を達成するため本発明によれば、電解質膜と、その電解質膜を挟む空気極および燃料極とを備え、それら電解質膜、空気極および燃料極はそれぞれ高分子イオン交換成分を有する、固体高分子型燃料電池の電解質膜-電極集成体において、前記高分子イオン交換成分は、無フッ素であって溶剤に可溶な芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分である固体高分子型燃料電池の電解質膜-電極集成体が提供される。

【0007】 前記集成体を溶剤に浸漬すると、外側にある空気極および燃料極の芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分が溶解し、これにより触媒粒子の回収が行われる。その後、未溶解物を溶剤から取出せば、それは電解質膜に相当する部分であるから、電解質膜の回収が行われる。これを膜成形材料として用いて電解質膜を得ることができる。

## 【0008】

【発明の実施の形態】 図 1 において、固体高分子型燃料電池を構成するセル 1 は、電解質膜 2 と、その両側にそれぞれ密着する空気極 3 および燃料極 4 と、それら両極 3、4 にそれぞれ密着する一対の拡散層 5、6 と、それら両拡散層 5、6 に密着する一対のセパレータ 7、8 とよりなる。電解質膜-電極集成体 9 には、実施例では、電解質膜 2、空気極 3、燃料極 4 だけでなく、両拡散層 5、6 も含まれる。

【0009】 電解質膜 2 は芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分より構成されている。空気極 3 および燃料極 4 は、それぞれ、カーボンブラック粒子の表面に複数の Pt 粒子を担持させた複数の触媒粒子と、前記と同一または異なる芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分とよりなる。

【0010】 各拡散層 5、6 は多孔質のカーボンペーパー、カーボンプレート等よりなり、また各セパレータ 7、8 は、同一の形態を有するように黒鉛化炭素より構成され、空気極 3 側のセパレータ 7 に存する複数の溝 10 に空気が、また燃料極 4 側のセパレータ 8 に在って前記溝 10 と交差する関係の複数の溝 11 に水素がそれぞれ供給される。

【0011】 芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分は、無フッ素であって溶剤に可溶であるといった特性を有する。この種の高分子イオン交換成分としては、表 1 に挙げた各種イオン交換体が用いられる。

## 【0012】

【表 1】

高分子イオン交換成分	母 体	母体のベンゼン環のH原子との置換基
例 1	ポリエーテルエーテルケトン (PEEK)	スルホン酸基
例 2	ポリエーテルスルホン (PES)	
例 3	ポリスルホン (PSF)	
例 4	ポリエーテルイミド (PEI)	
例 5	ポリフェニレンスルフィド (PPS)	
例 6	ポリフェニレンオキシド (PPO)	

20

【0013】溶剤としては、表2に挙げた各種極性溶剤が用いられる。

【0014】

【表2】

極 性 溶 剤	沸 点
ジメチルアセトアミド (DMAc)	165.5℃
ジメチルホルムアミド (DMF)	153℃
ジメチルスルフォキシド (DMSO)	189℃
トリエチルフォスフェート (TEP)	115℃
N-メチルピロリドン (NMP)	202℃

【0015】電解質膜2を構成する芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分、つまり第1の高分子イオン交換成分（第1の芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分）と、空気極3および燃料極4の芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分、つまり第2の高分子イオン交換成分（第2の芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分）との、溶剤に対する溶解性は、第2の高分子イオン交換成分の方が第1の高分子イオン交換成分よりも大であることが好ましい。その理由は、空気極3および燃料極4の第2の高分子イオン交換成分は触媒反応が生じる位置の極く近傍に存在していることから熱的劣化が激しいので、電解質膜2よりも先に回収して廃棄することにある。これにより、電解質膜2の第1の高分子イオン交換成分の純度を高めることが可能である。

【0016】この溶解性の差は、第1、第2の高分子イオン交換成分が同一または同種である場合には、両高

分子イオン交換成分の平均分子量に差を設けることによって達成される。つまり、平均分子量が低い方が高いものよりも溶解し易いのである。例えば、耐久性を考慮して、第1、第2の高分子イオン交換成分が5000以上の平均分子量を持つことを前提として、第1の高分子イオン交換成分の平均分子量をAとし、また第2の高分子イオン交換成分の平均分子量をBとしたとき、両平均分子量の比 $B/A$ は $0.1 \leq B/A < 1.0$ であることが好ましい。ただし、比 $B/A$ が $B/A < 0.1$ になると、空気極3および燃料極4の耐久性が低下して、それらの厚さ保持能が大いに減退するため発電性能等の経年変化が著しくなる。一方、 $B/A \geq 1.0$ では電解質膜2を構成する第1の高分子イオン交換成分の回収率が低下する。

【0017】第1、第2の高分子イオン交換成分として、溶剤に対する溶解性を異にし、且つ異なった化学組

成を有する二種のものを使用することも可能である。

【0018】以下、具体例について説明する。

#### I. 電解質膜-電極集成体の製造

カーボンブラック粒子（商品名：ケッチェンブラック EC）に Pt 粒子を担持させて触媒粒子を調製した。触媒粒子における Pt 粒子の含有量は 50 wt % である。

【例-I】芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分として、表 1 の例 1（PEEK）であって、平均分子量が 50,000 の第 1 の高分子イオン交換成分と、平均分子量が 45,000 の第 2 の高分子イオン交換成分を用意した。この場合、第 1 の高分子イオン交換成分の平均分子量 A と第 2 の高分子イオン交換成分の平均分子量 B との比  $B/A$  は  $B/A = 0.9$  である。

【0019】第 1 の高分子イオン交換成分を用いて厚さ 50  $\mu\text{m}$  の電解質膜 2 を成形した。また第 2 の高分子イオン交換成分を表 2 の NMP に還流溶解した。この溶液における第 2 の高分子イオン交換成分の含有量は 6 wt % である。

【0020】第 2 の高分子イオン交換成分含有溶液に、重量比で第 2 の高分子イオン交換成分：触媒粒子 = 3 : 5 となるように触媒粒子を混合し、次いでボールミルを用いて触媒粒子の分散を図り、空気極 3 および燃料極 4 用スラリを調製した。このスラリを、Pt 量が 0.5 mg/ $\text{cm}^2$  となるように電解質膜 2 の両面にそれぞれ塗布し、乾燥後それら塗布層に、それぞれ撥水処理を施された拡散層 5、6 用多孔質カーボンプレートを当て、140℃、1.5 MPa、1 分間の条件でホットプレスを行い、電解質膜-電極集成体 9 を得た。これを実施例

(1) とする。

【例-II】芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分として、例-I 同様に、表 1 の例 1（PEEK）であって、平均分子量が 50,000 の第 1 の高分子イオン交換成分と、平均分子量が 45,000 の第 2 の高分子イオン交換成分を用意した。この場合、第 1 の高分子イオン交換成分の平均分子量 A と第 2 の高分子イオン交換成分の平均分子量 B との比  $B/A$  は  $B/A = 0.9$  である。

【0021】以後、ホットプレスの温度を 200℃に設定した、という点を除き、例-I と同様の方法を実施して電解質膜-電極集成体 9 を得た。これを実施例 (2) とする。

【例-III】芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分として、表 1 の例 2（PES）であって、平均分子量が 50,000 の第 1 の高分子イオン交換成分と、平均分子量が 45,000 の第 2 の高分子イオン交換成分を用意した。この場合、第 1 の高分子イオン交換成分の平均分子量 A と第 2 の高分子イオン交換成分の平均分子量 B との比  $B/A$  は  $B/A = 0.9$  である。

【0022】以後、ホットプレスの温度を 190℃に設定した、という点を除き、例-I と同様の方法を実施して電解質膜-電極集成体 9 を得た。これを実施例 (3)

とする。

【例-IV】芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分として、表 1 の例 3（PSF）であって、平均分子量が 50,000 の第 1 の高分子イオン交換成分と、平均分子量が 25,000 の第 2 の高分子イオン交換成分を用意した。この場合、第 1 の高分子イオン交換成分の平均分子量 A と第 2 の高分子イオン交換成分の平均分子量 B との比  $B/A$  は  $B/A = 0.5$  である。

【0023】以後、ホットプレスの温度を 170℃に設定した、という点を除き、例-I と同様の方法を実施して電解質膜-電極集成体 9 を得た。これを実施例 (4) とする。

【例-V】芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分として、例-IV 同様に、表 1 の例 3（PSF）であって、平均分子量が 50,000 の第 1 の高分子イオン交換成分と、平均分子量が 12,500 の第 2 の高分子イオン交換成分を用意した。この場合、第 1 の高分子イオン交換成分の平均分子量 A と第 2 の高分子イオン交換成分の平均分子量 B との比  $B/A$  は  $B/A = 0.25$  である。

【0024】以後、例-IV 同様に、ホットプレスの温度を 170℃に設定した、という点を除き、例-I と同様の方法を実施して電解質膜-電極集成体 9 を得た。これを実施例 (5) とする。

【例-VI】芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分として、例-IV 同様に、表 1 の例 1（PEEK）であって、平均分子量が 50,000 の第 1 の高分子イオン交換成分と、平均分子量が 5,000 の第 2 の高分子イオン交換成分を用意した。この場合、第 1 の高分子イオン交換成分の平均分子量 A と第 2 の高分子イオン交換成分の平均分子量 B との比  $B/A$  は  $B/A = 0.1$  である。以後、例-IV 同様に、ホットプレスの温度を 170℃に設定した、という点を除き、例-I と同様の方法を実施して電解質膜-電極集成体 9 を得た。これを実施例 (6) とする。

【例-VII】芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分として、例-I 同様に、表 1 の例 1（PEEK）であって、平均分子量が 50,000 の第 1 の高分子イオン交換成分と、平均分子量が 2,500 の第 2 の高分子イオン交換成分を用意した。この場合、第 1 の高分子イオン交換成分の平均分子量 A と第 2 の高分子イオン交換成分の平均分子量 B との比  $B/A$  は  $B/A = 0.05$  である。

【0025】以後、例-IV 同様に、ホットプレスの温度を 170℃に設定した、という点を除き、例-I と同様の方法を実施して電解質膜-電極集成体 9 を得た。これを比較例 (1) とする。

【例-VIII】芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分として、例-I 同様に、表 1 の例 1（PEEK）であって、平均分子量が 50,000 の第 1 の高分子イオン交換成分と、平均分子量が 75,000 の第 2 の高分子イ

オン交換成分を用意した。この場合、第1の高分子イオン交換成分の平均分子量Aと第2の高分子イオン交換成分の平均分子量Bとの比 $B/A$ は $B/A=1.5$ である。

【0026】以後、例-IV同様に、ホットプレスの温度を $170^{\circ}\text{C}$ に設定した、という点を除き、例-Iと同様の方法を実施して電解質膜-電極集成体9を得た。これを比較例(2)とする。

## II. 電解質膜を構成する第1の高分子イオン交換成分の回収等

実施例(1)を表2のDMAc(沸点: $165.5^{\circ}\text{C}$ )に浸漬し、次いで、そのDMAcを $165^{\circ}\text{C}$ まで昇温し、これにより空気極3および燃料極4を構成する第2の高分子イオン交換成分を溶解した。電解質膜2と拡散層5、6とをDMAc中から取出し、そのDMAcに加圧濾過処理を施してDMAcから触媒粒子および第2の高分子イオン交換成分の混合物を分離した。その混合物を燃やして触媒粒子を回収した。

【0027】一方、電解質膜2を、新たなDMAcに浸漬し、次いで、そのDMAcを $165^{\circ}\text{C}$ まで昇温し、これにより電解質膜2、したがって第1の高分子イオン交換成分を完全に溶解した。この溶液を引続き昇温状態に保持して残部が $50\text{vol}\%$ 以下となるまで濃縮した。濃縮液にアセトンを加えて第1の高分子イオン交換成分

を沈澱させ、次いで濾過を行って第1の高分子イオン交換成分を回収した。

【0028】実施例(2)～(6)および比較例

(1)、(2)につき、前記同様の作業を行って、それらにおける触媒粒子および第1の高分子イオン交換成分を回収した。

【0029】そして、当初の第1の高分子イオン交換成分の重量をDとし、回収後のその重量をEとして、回収率 $F=(E/D)\times 100(\%)$ を算出した。

10 【0030】また実施例(1)～(6)および比較例(1)、(2)について、 $150^{\circ}\text{C}$ 、温度 $80\%$ 、面圧 $0.8\text{MPa}$ 、 $200$ 時間の条件で圧縮耐久試験を行い、電解質膜2の厚さ保持率Hおよび空気極3(燃料極4でも可)の厚さ保持率Jを求め、次いで両厚さ保持率H、Jの比率 $K=(J/H)\times 100(\%)$ を算出した。

【0031】表3は実施例(1)～(6)および比較例(1)、(2)に関する第1、第2の高分子イオン交換成分の平均分子量A、Bの比 $B/A$ 、第1の高分子イオン交換成分の回収率Fおよび両厚さ保持率H、Jの比率Kを示す。

20 【0032】

【表3】

電解質膜- 電極集成体	両平均分子量 の比 $B/A$	第1の高分子イ オン交換成分の 回収率F(%)	両厚さ保持率 の比率K(%)
実施例(1)	0.9	90	98
実施例(2)	0.9	90	98
実施例(3)	0.9	90	98
実施例(4)	0.5	92	94
実施例(5)	0.25	92	92
実施例(6)	0.1	92	88
比較例(1)	0.05	91	64
比較例(2)	1.5	52	100

【0033】図2は、表3に基づいて、両平均分子量の比 $B/A$ と、第1の高分子イオン交換成分の回収率Fおよび両厚さ保持率の比率Kとの関係をグラフ化したものである。

【0034】表3、図2から明らかなように、実施例(1)～(6)においては第1の高分子イオン交換成分の回収率Fおよび両厚さ保持率の比率Kが高い。これ

は、両平均分子量A、Bが $A, B \geq 5000$ であると共に比 $B/A$ が $0.1 \leq B/A < 1.0$ であることに起因する。

【0035】比較例(1)は第2の高分子イオン交換成分の平均分子量Bが、 $B \leq 5000$ であることから、第1の高分子イオン交換成分の回収率Fは高いが、空気極3の圧縮耐久性が低く、したがって比率Kが低下する。

一方、比較例(2)は、 $B/A \geq 1.0$ であることから、第1の高分子イオン交換成分の方が第2の高分子イオン交換成分よりも溶解し易いため、第1の高分子イオン交換成分の回収率Fが大幅に低下する。

### III. 撥水剤の有無と発電性能との相関

#### (1) 実施例(7)の製造

第1のカーボンブラック粒子(商品名:ケッチェンブラックEC)にPt粒子を担持させて燃料極4用触媒粒子を調製した。触媒粒子におけるPt粒子の含有量は50wt%である。

【0036】また第2のカーボンブラック粒子(商品名:Vulcan XC-72)にPt粒子を担持させて空気極3用触媒粒子を調製した。この触媒粒子におけるPt粒子の含有量は50wt%である。

【0037】芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分として、表1の例1(PEEK)であって、平均分子量が50,000の第1の高分子イオン交換成分と、平均分子量が45,000の第2の高分子イオン交換成分を用意した。この場合、第1の高分子イオン交換成分の平均分子量Aと第2の高分子イオン交換成分の平均分子量Bとの比 $B/A$ は $B/A = 0.9$ である。

【0038】第1の高分子イオン交換成分を用いて厚さ50 $\mu$ mの電解質膜2を成形した。また第2の高分子イオン交換成分を表2のNMPに還流溶解した。この溶液における第2の高分子イオン交換成分の含有量は6wt%である。

【0039】第2の高分子イオン交換成分含有溶液に、重量比で第2の高分子イオン交換成分:燃料極4用触媒粒子=3:5となるように、その触媒粒子を混合し、次いでボールミルを用いて触媒粒子の分散を図り、燃料極4用スラリを調製した。

【0040】また前記第2の高分子イオン交換成分含有

溶液に、重量比で第2の高分子イオン交換成分:空気極3用触媒粒子=3:5となるようにその触媒粒子を混合し、次いでボールミルを用いて触媒粒子の分散を図り、空気極3用スラリを調製した。両スラリを、Pt量が0.5mg/cm<sup>2</sup>となるように電解質膜2の両面にそれぞれ塗布し、乾燥後それら塗布層に、それぞれ拡散層5、6用カーボンペーパーを当て、140℃、1.5MPa、1分間の条件でホットプレスを行い、電解質膜-電極集成体9を得た。これを実施例(7)とする。

#### 10 【0041】(2)比較例(3)の製造

実施例(7)の製造で述べた空気極3用スラリに、撥水剤として、PTFE(ポリテトラフルオロエチレン)を添加して新たな空気極3用スラリを調製した。この場合、PTFEの添加量Lは、第2の高分子イオン交換成分および空気極3用触媒粒子の重量和をMとしたとき、その10wt%、つまり $L = 0.1M$ に設定された。

【0042】このようなPTFEを含む空気極3用スラリを用いた、という点を除き、実施例(7)の場合と同様の方法を実施して電解質膜-電極集成体9を得た。これを比較例(3)とする。

【0043】(3)実施例(7)を用いて、固体高分子型燃料電池を組立てて発電を行い、電流密度と端子電圧との関係を測定した。また比較例(3)についても同様のことを行った。

【0044】表4は測定結果を示す。表中、電池〔実(7)〕は実施例(7)を用いた電池を意味し、電池〔比(3)〕は比較例(3)を用いた電池を意味する。これは以後同じである。なお、60℃における水吸着量は、ケッチェンブラックECが370cc/gであり、Vulcan XC-72が72cc/gであった。

【0045】

【表4】



電流密度 (A/cm <sup>2</sup> )	端 子 電 圧 (V)	
	電池〔実(7)〕	電池〔比(3)〕
0.0	0.95	0.96
0.1	0.82	0.83
0.2	0.77	0.78
0.3	0.72	0.72
0.4	0.7	0.7
0.5	0.67	0.68
0.6	0.65	0.66
0.7	0.62	0.64
0.8	0.58	0.59
0.9	0.54	0.55
1.0	0.5	0.51
1.1	0.46	0.48
1.2	0.42	0.43
1.3	0.38	0.38
1.4	0.33	0.33
1.5	0.24	0.24

【0046】図3は表4に基づいて電流密度と端子電圧との関係をグラフ化したものである。表4および図3から明らかなように、撥水剤としてPTFEを用いた電池〔比(3)〕はPTFEを持たない電池〔実(7)〕に比べて若干発電性能が優れているが、その差は、電流密度1.0 A/cm<sup>2</sup>における端子電圧差が10 mVである、といったように僅少である。

【0047】実施例(7)および比較例(3)において、電解質膜2、したがって第1の高分子イオン交換成分の回収率は略同じであるが、空気極3からの触媒粒子の回収は、比較例(3)の場合、PTFEを含んでいることから非常に難しい。

【0048】

【発明の効果】請求項1記載の発明によれば、前記のように構成することによって、空気極および燃料極に含まれる触媒粒子と、電解質膜の高分子イオン交換成分とを回収して再利用することが可能な電解質膜—電極集成体を提供することができる。

【0049】請求項2記載の発明によれば、触媒粒子および電解質膜の回収率を一層向上させることが可能な電解質膜—電極集成体を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】固体高分子型燃料電池を構成するセルの概略側面図である。

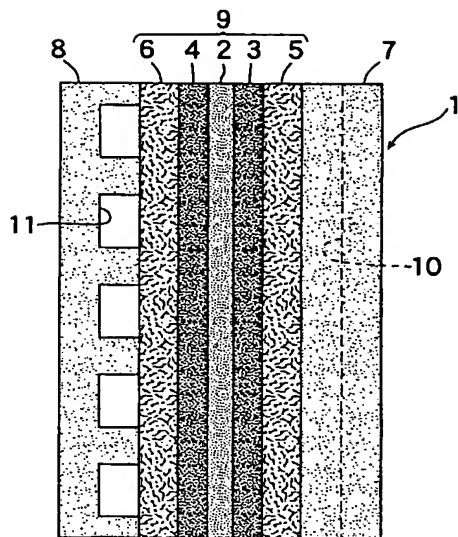
【図2】両平均分子量の比B/Aと、第1の高分子イオン交換成分の回収率Fおよび両厚さ保持率の比率Kとの関係を示すグラフである。

【図3】実施例(7)、比較例(3)を用いた固体高分子型燃料電池の電流密度と端子電圧との関係を示すグラフである。

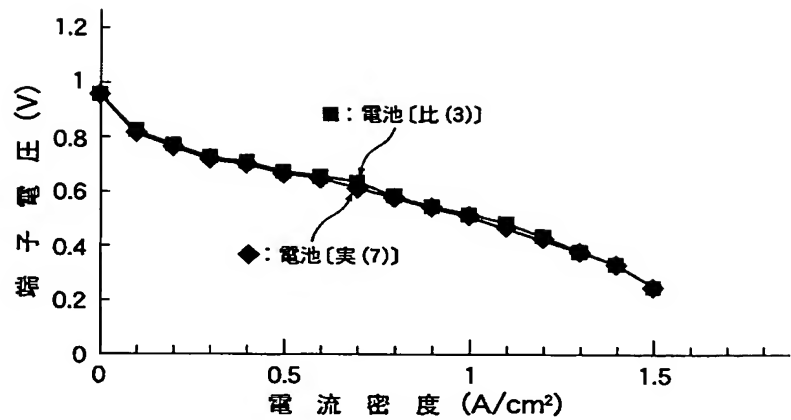
【符号の説明】

- 1 ……セル
- 2 ……電解質膜
- 3 ……空気極
- 4 ……燃料極

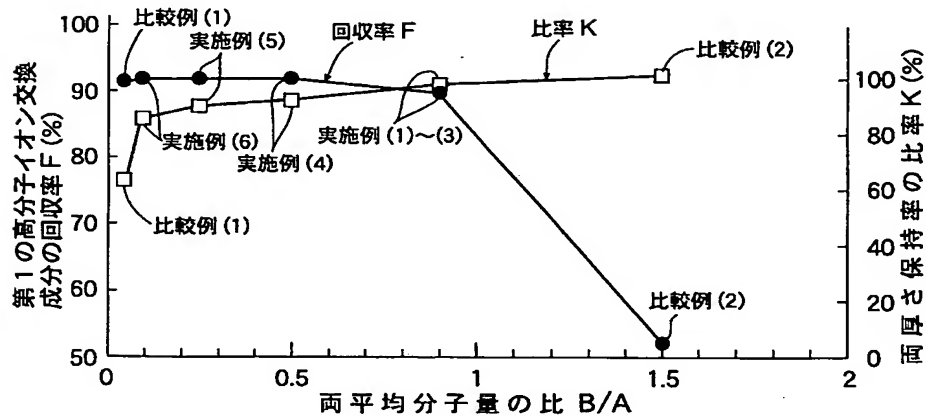
【図1】



【図3】



【図2】



## 【手続補正書】

【提出日】平成13年6月27日(2001. 6. 27)

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0024

【補正方法】変更

【補正内容】

【0024】以後、例-IV同様に、ホットプレスの温度を170℃に設定した、という点を除き、例-Iと同様の方法を実施して電解質膜-電極集成体9を得た。これを実施例(5)とする。

【例-VI】芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分として、例-I同様に、表1の例1(PEEK)であって、

平均分子量が50,000の第1の高分子イオン交換成分と、平均分子量が5,000の第2の高分子イオン交換成分を用意した。この場合、第1の高分子イオン交換成分の平均分子量Aと第2の高分子イオン交換成分の平均分子量Bとの比B/AはB/A=0.1である。以後、例-IV同様に、ホットプレスの温度を170℃に設定した、という点を除き、例-Iと同様の方法を実施して電解質膜-電極集成体9を得た。これを実施例(6)とする。

【例-VII】芳香族炭化水素系高分子イオン交換成分として、例-I同様に、表1の例1(PEEK)であって、平均分子量が50,000の第1の高分子イオン交換成分と、平均分子量が2,500の第2の高分子イオ

ン交換成分を用意した。この場合、第1の高分子イオン交換成分の平均分子量Aと第2の高分子イオン交換成分の平均分子量Bとの比 $B/A$ は $B/A=0.05$ である。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0030

【補正方法】変更

【補正内容】

【0030】また実施例(1)～(6)および比較例(1)、(2)について、150℃、湿度80%、面圧0.8MPa、200時間の条件で圧縮耐久試験を行い、電解質膜2の厚さ保持率Hおよび空気極3(燃料極4でも可)の厚さ保持率Jを求め、次いで両厚さ保持率H、Jの比率 $K=(J/H) \times 100$ (%)を算出した。

フロントページの続き

(72)発明者 金岡 長之  
埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社  
本田技術研究所内

(72)発明者 齋藤 信広  
埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社  
本田技術研究所内

(72)発明者 七海 昌昭  
埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社  
本田技術研究所内

Fターム(参考) 4D006 GA16 GA41 JA42C MA03  
MA06 MA31 MB19 MC05X  
MC46X MC47X MC59X MC61X  
MC62X MC63X MC88 MC90  
NA46 NA47 PC80  
5H026 AA06 CX05